This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.



BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

Offenlegungsschrift _® DE 198 53 182 A 1

(f) Int. Cl.⁷: C 02 F 1/461

C 01 C 1/10



PATENT- UND **MARKENAMT** (21) Aktenzeichen: Anmeldetag:

198 53 182.6 19.11.1998

(3) Offenlegungstag: 25. 5.2000

(71) Anmelder:

Technische Universität Dresden, 01069 Dresden, DE

(74) Vertreter:

Sender, F., Dipl.-Ing., 01069 Dresden

(72) Erfinder:

Fischer, Roland, Dr. rer. nat. habil., 01454 Radeberg, DE; Schönfuß, Dirk, Dr.rer.nat., 12524 Berlin, DE; Peters, Babett, 01097 Dresden, DE

(56) Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht zu ziehende Druckschriften:

> DE 25 15 539 B2 DE 41 13 911 A1 GB 22 67 290 A 56 14 078 A US ΕP 08 49 227 A2 EP 08 41 305 A2 WO 97 30 941 A1 WO 97 11 908 A2 WO 85 01 965 A1

JP Patent Abstracts of Japan:

07100466 A;

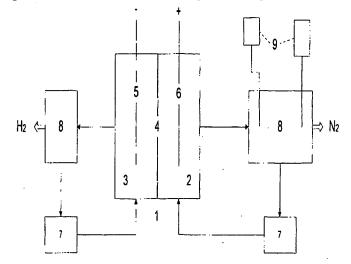
10000473 A;

08155463 A;

09220573 A;

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

- Werfahren zur elektrochemisch vermittelten Umsetzung von Ammonium aus salzhaltigen Lösungen
- Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Umwandlung von Ammonium in salzhaltigen wäßrigen Lösungen durch die Kombination elektrochemischer und chemischer Prozesse, vorzugsweise zu molekularem Stickstoff und Wasser. Das Verfahren ist dadurch gekennzeichnet, daß anodisch Chlor aus Chlorid gebildet wird. Durch Disproportionierung von Chlor entsteht das Oxidationsmittel hypochlorige Säure. Sie setzt sich mit dem in Lösung vorhandenem Ammoniak zu Stickstoff und Chlorid um. Der Prozeß findet im Anodenraum, einer in Katoden- und Anodenraum unterteilten Elektrolyseapparatur, bzw. in einem nachgeschalteten Reaktor bei konstant gehaltenem pH-Wert, statt. Die laufenden Kosten (z. B. Energie, Wartung, Chemikalieneinsatz) für diese umweltverträgliche Entsorgung von Ammonium können durch einfache Steuerung sehr gering gehalten werden.



DE 198 53 182 A 1

Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Umwandlung von Ammonium zu molekularem Stickstoff in salzhaltigen wäßrigen Lösungen durch Kombination elektrochemischer und chemischer Reaktionen gemäß dem Oberbegriff des Anspruch 1.

Ammonium entsteht bei der bakteriellen Zersetzung von pflanzlichen und tierischen stickstoffhaltigen Substanzen, beim Abbau stickstoffhaltiger Inhaltsstoffe aus häuslichen Abwässern und Abwässern der Viehzucht und Deponiesickerwässern. Abwässer der chemischen und eisenveredelnden Industrie können auch hohe Gehalte an Ammonium enthalten. Zur Behandlung dieser Abwässer stehen derzeit biologische, physikochemische und chemische Verfahren zur Verfügung. Biologisch wird Ammonium durch autotrophe Bakterien unter aeroben Bedingungen in Nitrat umgewandelt, das danach unter anaeroben Bedingungen durch heterotrophe und autotrophe Mikroorganismen zu Stickstoff reduziert werden kann. Nitrifikation und Denitrifikation sind relativ kostengünstige Verfahren. Nachteilig wirken sich die relativ aufwendige Steuerung und die Entsorgung des anfallenden Schlammes aus. Die biologischen Verfahren versagen total bei stark salzhaltigen Wässern. Physikochemische Verfahren zur NH₄-Eliminierung sind Strippen, Ionenaustausch, Umkehrosmose, Eindampfen und Kristallisieren. Bei diesen Verfahren erfolgt keine Stoffwandlung. Sie werden meist nur bei hohen Ammoniumkonzentrationen in der zu behandelnden Lösung eingesetzt und sind zum Teil sehr energieintensiv. Chemische Verfahren zur NH4-Eliminierung sind die MAP (Magnesium-Ammonium-Phosphat) Fällung und die Knickpunktchlorierung. Bei der Fällung wird Ammonium mit MgO und Phosphorsäure zu einem schwerlöslichen Doppelsalz gefällt, das als Dünger in der Landwirtschaft eingesetzt wird. Durch verschiedene Inhaltsstoffe in Abwässern kann die Fällung jedoch beeinträchtigt werden. Bei der Knickpunktchlorierung werden ammoniumhaltige Abwässer mit Chlor behandelt. Die Vorteile des Verfahrens bestehen in dem kostengünstigen Aufbau, der leichten Steuerung und in der Tatsache, daß bei diesem Verfahren eine Stoffwandlung vorzugsweise zu Stickstoff erfolgt. Nachteilig ist die Möglichkeit der Bildung toxischer chlororganischer Verbindungen, die in einem zusätzlichen Behandlungsschritt beseitigt werden müssen. Bei hohen Ammoniumgehalten sind die Kosten im Vergleich zur biologischen Nitrifikation höher. Die Knickpunktchlorierung wird deshalb zur Entfernung von Restammonium und Desinfektion der biologischen Nitrifikation nachgeschalten.

Grundlage der Knickpunktchlorierung ist die Eigenschaft von Chlor, in wässrigen Lösungen, zu hypochloriger Säure und Chlorid zu disproportionieren (p K_L = 3,4 bei pH 7), wobei das Gleichgewicht dieser Reaktion weitgehend auf der linken Seite liegt (vgl. Gl. 1). Durch Erhöhung des pH-Wertes läßt sich das Gleichgewicht verschieben, so daß vermehrt Hypochlorit gebildet wird.

$$Cl_2 + H_2O \leftrightarrow ClO^- + Cl^- + 2H^+$$
 (1)

Hypochlorige Säure ist in der Lage, in Abhängigkeit vom pH-Wert, Ammoniak (p K_S = 9,4) zu Monochloramin zu oxidieren (vgl. Gl. 2 und 3).

$$NH_4^+ + OH^- \leftrightarrow NH_3 + H_2O$$
 (2)

40

45

$$NH_3 + HOCl \rightarrow NH_2Cl + H_2O$$
 (3)

Durch nachgelagerte Aminierung des Monochloramins zu Chlorhydrazin und dessen Zerfall über Hydrazin entsteht in alkalischer Lösung Stickstoff und Chlorid (vgl. Gl. 4).

$$4 \text{ NH}_2\text{Cl} \rightarrow \text{N}_2 + 2 \text{ NH}_3 + \text{HCl}$$
 (4)

Die Gesamtreaktion der Knickpunktchlorierung läßt sich mit der Bruttoreaktion (vgl. Gl. 5) beschreiben.

$$2 \text{ NH}_3 + 3 \text{ Cl}_2 + 6 \text{ OH}^- \rightarrow \text{N}_2 + 6 \text{ Cl}^- + 6 \text{ H}_2\text{O}$$
 (5)

Das eigentliche Agens zur Oxidation von Ammoniak stellt die hypochlorige Säure dar, die durch Hydrolyse des Hypochlorits gebildet wird (p $K_S = 7,5$). Da sich der p K_S -Wert von dem des Ammoniaks unterscheidet, läuft die Reaktion nur dann qualitativ und quantitativ vollständig ab, wenn der pH-Wert und das Massenverhältnis von Cl: N bestimmte Werte annehmen.

Aufgrund der großen Chlormengen, die zur Oxidation von Ammoniak zu Stickstoff notwendig sind, wird das Knickpunktverfahren bei höheren Ammoniakkonzentrationen unwirtschaftlich. Aus diesem Grund wurden Verfahren (jap. Patent 07100466) und EP 0849227 entwickelt, die zur Knickpunkchlorierung anodisch erzeugtes Chlor oder von außen zudosiertes Chlor eingesetzen (vgl. Gl. 6)

$$2 \text{ Cl}^- \rightarrow \text{Cl}_2 + 2e^-$$
 (6)

Sind keine reduzierbaren Ionen in der zu behandelnden Lösung vorhanden oder ist deren Konzentration im Vergleich zum fließenden Strom bei gegebenem hydrodynamischen Strömungsverhältnissen im Elektrolyseur zu gering, so entstehen an der Katode in jedem Fall Wasserstoff und Hydroxidionen nach Gleichung 7.

$$2 H_2O + 2 e^- \rightarrow H_2 + 2 OH^-$$
 (7)

Im alkalischen Milieu erfolgt jedoch, wie oben bereits erwähnt, eine verstärkte Deprotonierung hypochloriger Säure zu Hypochlorit gemäß Gleichung 8.

$$HOCl + OH^- \leftrightarrow H_2O + ClO^-$$
 (8)

Hypochlorit reagiert im alkalischen Milieu selbst mit hypochloriger Säure nach Gleichung 9 zu Chlorat und steht dann nicht mehr zur Oxidation von Ammoniak zur Verfügung. Ein zu geringer pH-Wert wirkt sich ebenfalls negativ auf die Stickstoffausbeute aus, da verstärkt unerwünschte Nebenprodukte gebildet werden (vgl. Gl. 10 und 11), wobei aus Dichloramin je nach Reaktionsbedingungen Lachgas und Nitrat (vgl. Gl. 12 und 13) gebildet werden können. Diese Nebenreaktionen führen neben einer Senkung der Stromausbeute zu unerwünschten Nebenprodukten.

$$2 \text{ HOCl} + \text{ClO}^- + 2 \text{ OH}^- \rightarrow 2 \text{ H}_2\text{O} + \text{ClO}_3^- + 2 \text{ Cl}^- \quad (9)$$

$$\text{NH}_3 + 2 \text{ HOCl} \rightarrow \text{NHCl}_2 + 2 \text{ H}_2\text{O} \quad (10)$$

$$\text{NH}_3 + 3 \text{ HOCl} \rightarrow \text{NCl}_3 + 3 \text{ H}_2\text{O} \quad (11)$$

$$2 \text{ NHCl}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2\text{O} + 4 \text{ HCl} \quad (12)$$

$$\text{NHCl}_2 + 2 \text{ HOCl} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{NO}_3^- + 4 \text{ HCl} + \text{H}^+ \quad (13)$$

Die Aufgabe der Erfindung besteht darin, mittels eines Verfahrens Ammonium bzw. Ammoniak, in stark salzhaltigen Lösungen, auch bei höheren Konzentrationen, zu molekularem Stickstoff zu oxidieren und dabei Verluste durch Nebenreaktionen zu vermeiden.

Erfindungsgemäß wird die Aufgabe durch ein Verfahren mit dem in Anspruch 1 genannten Merkmalen gelöst. Vorteilhaft ausgestaltete Varianten ergeben sich im Zusammenhang mit den in den Unteransprüchen 2 bis 13 genannten Merkmalen.

25

35

50

55

Wesentlich an der Erfindung ist, daß Anoden und Katodenraum des elektrochemischen Reaktors voneinander durch eine Membran oder ein Diaphragma getrennt sind, die zu behandelnde ammoniakhaltige Lösung rasch im Kreislauf durch den Anodenraum geführt und mit an der Anode entstehendem Chlor angereichert wird. In diesem Kreislauf ist ein außerhalb des Elektrolyseurs befindliches Reaktionsgefäß integriert. Aufgrund der Trennung von Anoden- und Katodenraum ändert sich durch die Elektrolyse der pH-Wert von Anolyt und Katolyt (vgl. Gl. 7 und 5). Die Kompensation der pH-Wertänderung erfolgt im Falle der vollständigen Trennung von Anolyt und Katolyt durch Zugabe von Lauge zum Anolyten und Säure zum Katolyten automatisch von außen mit Hilfe entsprechender Dosiereinrichtungen, die mit pH-Sensoren gekoppelt sind. Wenn die Trennung von Anolyt und Katolyt nicht nötig ist, werden Anolyt und Katolyt nach Entgasung in einem gesonderten, in den Kreislauf integrierten Reaktionsgefäß vereinigt, um pH-Wert Unterschiede beider Teillösungen auszugleichen.

Um einen schnellen Durchsatz von Anolyt und Katolyt durch die Elektrodenräume zu gewährleisten und den ohmschen Widerstand der elektrochemischen Zelle auf ein Minimum zu reduzieren, sind die Elektrodenräume als flache schmale Kanäle ausgelegt. Als Anodenmaterial kommen chlorbeständige Materialien, wie Pt, Graphit, vorzugsweise jedoch mit seltenen Erden dotierte dimensionsstabile Elektroden auf Titanbasis in Frage. Um eine maximale Stromausbeute zu sichern, ist es notwendig, Elektrodenmaterial mit möglichst geringer Chlorüberspannung im Vergleich zu Sauerstoff einzusetzen.

Die zu behandelnde Lösung wird gewöhnlich im Kreislauf durch den Anodenraum einer Elektrolysezelle geführt. Es ist aber auch ein kaskadenförmiger Aufbau mehrerer Elektrolysezellen möglich, so daß die zu behandelnde Lösung den Anodenraum der Elektrolysezelle nur einmal durchläuft. Die Art des Aufbaus hängt entscheidend von der Ausführung der Elektrolysezellen sowie von der Ammoniummenge ab. Der zur Elektrolyse notwendige Strom kann umweltschonend mit Hilfe von Solarenergieanlagen erzeugt werden.

Da bei der Ammoniakoxidation aus hypochloriger Säure wieder Chlorid entsteht, dient das Chlor nur als Elektronenüberträger. Wenn kein Chlorid in der zu behandelnden Lösung vorhanden ist, kann durch geeignete Maßnahmen, wie z. B. Einsatz eines Ionentauschers in einer nachgeschalteten Verfahrensstufe, Chlorid der zu behandelnden Lösung wieder entzogen und in einem geschlossenen Stoffkreislauf geführt werden.

Aus den Gleichungen 5, 6 und 7 ergibt sich für das erfindungsgemäße Verfahren folgende Bruttogleichung (vgl. Gl. 14).

$$2 \text{ NH}_3 \rightarrow \text{N}_2 + 3 \text{ H}_2 \quad (14)$$

Die Reaktionsgeschwindigkeit für den Gesamtprozeß hängt wesentlich von der Konzentration des zu oxidierenden Ammoniaks und der Konzentration der hypochlorigen Säure ab. Während die Ammoniakkonzentration durch die Beschaffenheit der zu behandelnden Lösung vorgegeben ist und nur durch den pH-Wert nach Gleichung 2 beeinflußt werden kann, ist die Konzentration der hypochlorigen Säure von der Chloridkonzentration, dem pH-Wert, der Stromdichte, der Anodenoberfläche und den Diffusionsverhältnissen für Chlorid an der Anode abhängig. Durch geeignete Betriebsweise wird der nötige Strom zur Produktion von Chlor an der Anode entsprechend der vorherrschenden Ammoniakkonzentration eingestellt oder automatisch eingeregelt. Der Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, daß die intermediäre Chlorkonzentration gering gehalten werden kann. Durch Elektrolyse und den Kreislauf der zu behandelnden Lösung im Schlaufenbetrieb wird permanent Chlor nachgeliefert, um hypochlorige Säure zu bilden. Dabei wird dieses Chlor auch aus Chlorid gebildet, welches bei der Reaktion wieder entsteht. Durch die Trennung von Anoden- und Katodenraum, Aufrechterhaltung des optimalen pH-Wertes und bedarfsgerechte Chlorbildung an der Anode, was durch Regelung des Stromes leicht zu erreichen ist, werden die Nebenreaktionen, die die Stromausbeute verschlechtern, weitestgehend vermieden.

DE 198 53 182 A 1

Anhand eines Versuchsaufbaus, der in der Zeichnung schematisch dargestellt ist, wird ein Ausführungsbeispiel des Verfahrens näher beschrieben. Fig. 1 zeigt eine Laborversuchsanlage zur Veranschaulichung des Verfahrens.

Zur Veranschaulichung des Verfahrens dient eine Versuchsanlage, wie sie in Fig. 1 dargestellt ist. Die Anlage besteht aus einer Membranelektrolysezelle 1, bei der Anoden- 2 und Katodenraum 3 durch eine Membran 4 voneinander getrennt sind. Katode 5 und Anode 6 sind mit einer Gleichstromquelle verbunden. Anoden- und Katodenkreislauf sind an eine Pumpe 7 angeschlossen, mit der Anolyt und Katolyt im Kreislauf durch die Elektrodenräume geführt werden. In die Kreisläufe sind Entgasungsgefäße 8 sowie Meß- und Dosiereinrichtungen 9 zur pH-Regelung integriert. Bei den Laborversuchen wurde mit Hilfe einer Laborversuchsanlage auf die automatische pH-Regelung während der Versuchszeit verzichtet, dafür jedoch das Puffersystem (Borsäure/Borat) eingesetzt. Die Stromstärke betrug während der gesamten Versuchszeit konstant 0,2 A. Die verwendete Pt-Anode besaß eine Fläche von 13 cm². Die Chloridausgangskonzentration metrischer, ionen- und gaschromatographischer Analysenmethoden bestimmt. Tabelle 1 bis 3 zeigen den Verlauf der Abhängigkeit dieser Reaktion in Hinblick auf die Nebenreaktionen zu verdeutlichen.

Dabei ist NH₄-N_{ges} die Ammoniumkonzentration, NH₄-N_{um} die umgesetzte Ammoniumkonzentration, NO₃-N die Nitratkonzentration, NH₂Cl-N die Monochloraminkonzentration und N₂-N die Stickstoffkonzentration, bezogen auf das Anolytvolumen. Alle Konzentrationen beziehen sich auf Stickstoffäquivalente.

Zeitlicher Verlauf der Ammoniumumsetzung bei einem Anfangs-pH-Wert von 7,78

	- :						=
	Zeit	pH-Wert	NH ₄ -N _{ges}	NH ₄ -N _{um}	NO ₃ -N	NH ₂ CI-N	N ₂ -N
25	in		in	in	in	in	in
	h		mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L
30	0	7,78	168,0	0,0	0,0	0,0	0,0
	1	7,57	139,2	28,8	3,8	13,8	15,1
ĺ	2	7,15	117,9	50,1	6,5	16,6	23,4
35	3	6,71	95,2	72,8	10,7	15,8	33,1
	4	5,75	88,6	79,4	12,0	4,9	39,9
40	5	1,88	84,0	84,0	13,5	3,9	44,3
40 L		.,50	07,0	04,0	13,5	3,9	44,3

Wie aus Tabelle 1 hervorgeht, wird die Ammoniakoxidation und damit die Abnahme der Ammoniumkonzentration mit sinkendem pH-Wert immer langsamer. Das Absinken der Monochloraminkonzentration nach Erreichen eines maximalen Wertes bei pH 7,15 geht damit einher. Es ist ein Defizit zwischen umgesetztem Ammonium und den registrierten Reaktionsprodukten festzustellen, was sich auf die Bildung von unerwünschten, höheren Chloraminen im sauren Milieu zurückführen läßt. Tabelle 2 stellt den Verlauf der Ammoniakoxidation bei einem pH-Wert zwischen 9 und 8 dar. In diesem Fall sinkt die Ammoniumkonzentration und die Monochloraminkonzentration steigt kontinuierlich in dem betrachteten Zeitraum. Zwischen umgesetzten Ammonium und den bestimmten Reaktionsprodukten gibt es kaum ein Defizit, d. h. die Bildung höherer Chloramine wird in diesem pH-Bereich vermieden. Durch die unterschiedlichen pH-Werte verändern sich die Verhältnisse von entstehendem Nitrat und Stickstoff zum umgesetzten Ammonium im Gegensatz zu dem zwischenzeitlich gebildeten Monochloramin nur wenig. Tabelle 3 zeigt die Meßwerte eines Versuches, bei dem die Ammoniumausgangskonzentration so gewählt wurde, daß ein vollständiger Abbau des eingesetzten Ammoniums erreicht wird. Durch Absenken der Chloridausgangskonzentration, der Stromstärke sowie die Erhöhung der Durchflußgeschwindigkeit konnten diese Verhältnisse unter den Bedingungen der Laboranlage zugunsten des Stickstoffs verbessert werden.

60

15

20

65

Tabelle 2

Zeitlicher Verlauf der Ammoniumumsetzung bei einem Anfangs-pH-Wert von 9,03

Zeit	pH-Wert	NH ₄ -N _{ges}	NH ₄ -N _{um}	NO ₃ -N	NH ₂ CI-N	N ₂ -N
in		in	in	in	in	in
h		mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L
0	9,03	168,0	0,0	0,0	0,0	0,0
1	8,94	145,4	22,6	2,9	8,8	3,1
2	8,80	105,3	50,1	7,7	14,6	14,8
3	8,58	88,8	79,2	12,7	21,5	31,4
4	8,39	70,7	97,3	19,8	28,2	45,8
5	8,11	50,3	110,7	21,5	32,3	56,2

Tabelle 3 25

Zeitlicher Verlauf der Ammoniumumsetzung bei einer Anfangsammoniumkonzentration von 78 mg/L

Zeit	pH-Wert	NH ₄ -N _{ges}	NH ₄ -N _{um}	NO ₃ -N	NH ₂ CI-N	N ₂ -N
in		in	in	in	in	in
h		mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L
0	9,04	78,0	0,0	0,0	0,0	0,0
1	8,87	52,9	25,1	5,2	8,5	10,9
2	8,75	34,8	43,2	8,5	12,3	21,1
3	8,61	11,4	66,6	11,2	10,4	33,1
4	8,56	0,0	78,0	15,7	9,5	46,4
5	8,41	0,0	78,0	19,7	1,0	54,8

Bezugszeichenliste

1 Membranelektrolysezelle

2 Anodenraum

3 Katodenraum

4 Membran

5 Katode

6 Anode

7 Pumpe

8 Entgasungsgefäße

9 pH-Regelung

Patentansprüche

1. Verfahren zur Entfernung von Ammonium und/oder Ammoniak aus salzhaltigen wäßrigen Lösungen durch Umwandlung in molekularen Stickstoff, mittels einer Elektrolysezelle (1), wobei Anoden- (2) und Katodenraum (3) auf geeignete Weise voneinander getrennt sind und die Katoden (5) und Anoden (6) vom elektrischen Strom durchflossen werden, dadurch gekennzeichnet, daß in der zu behandelnden Lösung Chlorid vorhanden ist oder vorher zugegeben wird und der pH-Wert durch geeignete Maßnahmen auf einem bestimmten Wert konstant gehalten wird, so daß Ammoniak mit anodisch entwickeltem Chlor zu molekularem Stickstoff und Chlorid umgesetzt wird.

5

10

15

30

35

40

45

50

55

60

DE 198 53 182 A 1

- 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß für die Trennung von Anoden- und Katodenraum eine Membran oder ein Diaphragma verwendet wird.
- 3. Verfahren nach Anspruch 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß bei Abwesenheit von Chlorid oder zu geringem Chloridgehalt in der zu behandelnden Lösung, Chloridionen, z. B. in Form von Alkalichloriden, zugeführt werden. 4. Verfahren nach Anspruch 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß Anolyt und Katolyt in getrennten Kreisläufen

mitgeführt werden, in welchen Entgasungs- und Vorratsgefäße integriert sind.

5. Verfahren nach Anspruch 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß Anolyt und Katolyt nach Entgasung des Katolyten in ein gemeinsames Vorratsgefäß eingeleitet werden, von dem aus der Anoden- und Katodenkreislauf wieder getrennt beschickt werden.

6. Verfahren nach Anspruch 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß ein gegenüber Chlor beständiges Anodenmaterial mit niedriger Überspannung für die Chlorbildung verwendet wird.

7. Verfahren nach Anspruch 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß ein Anodenmaterial, dessen Überspannung für die elektrochemische Chlorbildung kleiner ist, als für die elektrochemische Sauerstoffbildung. Vorzugsweise sollte Pt, Graphit oder mit seltenen Erden oder Platin beschichtetes Titan Verwendung finden.

8. Verfahren nach Anspruch 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der pH-Wert des Anolyten auf einem Wert zwischen 7-10, vorzugsweise zwischen 8-9 konstant gehalten wird.

- 9. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Konstanthaltung des pH-Wertes des Anolyten durch Zugabe von Alkalilauge erfolgt, die automatisch mit Hilfe einer Dosiereinrichtung und einem pH-Sensor erfolgt.
- 10. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der zum Betrieb der Elektrolyse nötige Strom mit Hilfe von Solaranlagen gewonnen wird.

11. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß mehrere Elektrolysezellen in einer Kaskade hinter-

einander geschaltet werden.

12. Verfahren nach Anspruch 1-3, dadurch gekennzeichnet, daß der Elektrolysestrom an die in der zu behandelnden Lösung vorhandene Ammonium- bzw. Ammoniakkonzentration angepaßt wird.

13. Verfahren nach Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, daß die Regelung des Stromes automatisch in Verbindung mit einem Ammoniumsensor erfolgt.

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

30

5

10

15

20.

25

35

40

45

55

60

65

- Leerseite -

Nummer: Int. Cl.⁷: Offenlegungstag: DE 198 53 182 A % 3 C 02 F 1/461 25. Mai 2000

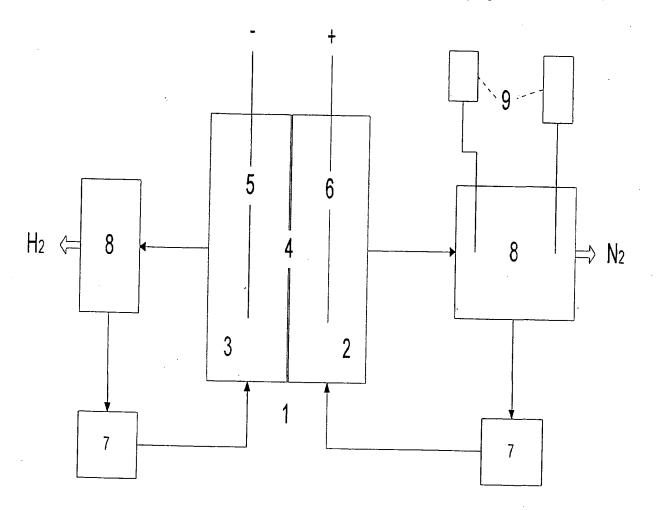


Fig. 1